

БОЯРЧЕНКОВ АЛЕКСЕЙ СЕРГЕЕВИЧ

**Квантовое плато намагниченности и
магнетокалорический эффект в
ферромагнитных спиновых цепочках.**

Специальность 01.04.07 – Физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Екатеринбург

2008

Работа выполнена на *кафедре теоретической физики Уральского государственного университета имени А.М.Горького*

Научный руководитель: *кандидат физико-математических наук, доцент Бострем Ирина Геннадьевна*

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук, профессор Скрыбин Юрий Николаевич
кандидат физико-математических наук, доцент Мальцев Владимир Николаевич

Ведущая организация: *Башкирский государственный университет*

Защита состоится «09» октября 2008 г. в 13⁰⁰ часов на заседании диссертационного совета Д 212.286.01 при *Уральском государственном университете им. А.М. Горького*, расположенном по адресу: 620083, г. Екатеринбург пр. Ленина, 51, комн. 248

С диссертацией можно ознакомиться в научной библиотеке *Уральского государственного университета им. А. М. Горького*

Автореферат разослан «_____» _____ 2008 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета,
доктор физико-математических наук

Кудреватых Н. В.

Общая характеристика работы

Актуальность работы

Процессы намагничивания в ферримагнитных спиновых цепочках, состоящих из двух сортов спинов (S, s) , привлекают внимание исследователей из-за возможности наблюдения эффектов квантования, проявляющихся в виде плато в кривой намагничивания. Согласно теореме Либ-Шульца-Маттиса [1, 2], необходимым условием для появления плато является соотношение

$$\tilde{S} - m = \text{integer},$$

в котором \tilde{S} и m сумма спинов по всем узлам элементарной ячейки и ее намагниченность, соответственно. Для ферримагнитных спиновых цепочек это означает, что имеется плато намагниченности $m = S - s$ в основном состоянии и плато с более высокими значениями $m = S - s + 1, S - s + 2, \dots, S + s$. В результате ряда исследований было установлено, что плато основного состояния имеет квантовую природу, и что для интерпретации поведения намагниченности удобно ввести представление составных спинов, основанного на картине состояния валентных связей Аффлека-Кенеди-Либ-Тасаки, предложенной для халдейновских спиновых цепочек [3]. Применительно к ферримагнитной спиновой цепочке спинов (S, s) это означает, что система сочетает в себе свойства антиферромагнетика спина $2s$ и ферромагнетика спина $(S - s)$ [4].

При изучении магнетокалорического эффекта в одномерных антиферромагнетиках указывалось, что следует ожидать усиления магнетокалорического эффекта вблизи квантовых фазовых переходов в магнитном поле, в частности, на границах плато намагниченности [5]. Такие предсказания были сделаны для индуцированных полем переходов в системах с синглетным основным состоянием, спиновых лестниц и халдейновских спиновых цепочек [6].

На основании тех же физических аргументов, можно ожидать необычного

поведения магнетокалорического эффекта в (S, s) -ферримагнитных спиновых цепочках при низких температурах. Включение магнитного поля приводит к открытию щели в спектре ферромагнитных возбуждений, связанных с $(S - s)$ ферромагнитной составляющей ферримагнетика. В случае малых полей это будет сопровождаться увеличением температуры системы в процессе адиабатического намагничивания. Поля большей величины будут вызывать разрушение состояния валентных связей, связанного со спин- $2s$ антиферромагнитной составляющей ферримагнетика, из-за конденсации локальных триплетных возбуждений, что приведет к охлаждению системы. Вблизи точки перехода, соответствующей разрушению плато основного состояния, будет происходить накопление энтропии, и, как следствие, ожидается сильный магнетокалорический эффект, аналогичный найденному в геометрически фрустрированных антиферромагнетиках [7].

В работе [8, 9] при помощи скейлинговой теории квантовых фазовых переходов было показано, что параметр Грюнайзена и магнетокалорический эффект являются прекрасными инструментами для обнаружения предполагаемых квантовых критических точек. Хотя сам квантовый фазовый переход происходит при нулевой температуре при изменении внешнего магнитного поля, магнитные термодинамические свойства при конечных температурах оказываются крайне чувствительными к соответствующему изменению поля. В частности, параметр Грюнайзена для магнитных систем

$$\Gamma_H = -\frac{(dM/dT)_H}{C_H} = \frac{1}{T} \frac{dT}{dH} \Big|_S, \quad (1)$$

где C_H – теплоемкость при постоянном магнитном поле H и $(dM/dT)_H$ – производная намагниченности по температуре, обнаруживает характерное изменение знака вблизи квантовой критической точки.

В диссертации магнетокалорический эффект исследуется на примере ферримагнитной цепочки $(5/2, 1)$, предложенной ранее в качестве модели для изу-

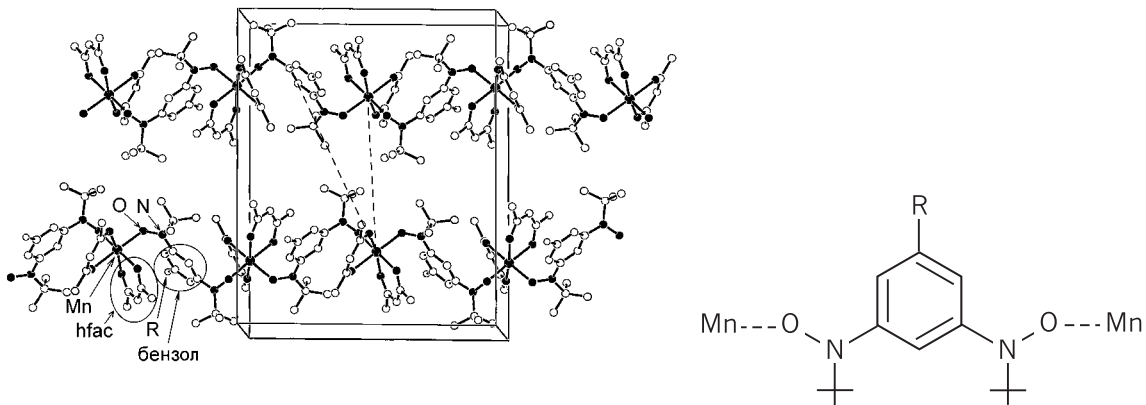


Рис. 1. Пространственный вид (а) и схема цепочечной структуры соединения $[Mn(hfac)_2BNO_R]$ (б).

чения магнитных свойств металл-органических соединений $[Mn(hfac)_2BNO_R]$ ($R = H, F, Cl, Br$; *hfac* – гексафторацетилацетат), синтезированных около 10 лет назад группой проф. К. Иноуэ [10, 11]. Ранее было установлено, что соединения имеют вид длинных зигзагообразных полимерных цепочек, образованных двухвалентным ионом Mn^{2+} и бис-аминоксильными радикалами (Рис. 1). Магнитными моментами обладают ионы Mn^{2+} ($S = 5/2$) и фрагмент *NO*-группы дирадикалов ($S = 1/2$). При низких температурах (ниже 4.8 – 5.5 К, в зависимости от типа *R*-иона) наблюдается магнитное упорядочение как внутри цепочек, так и между ними. Межцепочечное обменное взаимодействие имеет антиферромагнитный характер для первых двух соединений (*H, F*), и является ферромагнитным для двух последних (*Cl, Br*). Однако, и в том и в другом случае оно на три порядка слабее внутрицепочечного, и при температурах выше T_C (T_N) соединения семейства $[Mn(hfac)_2BNO_R]$, с точки зрения магнитных свойств, являются квазиодномерными. Экспериментально определен тип внутрицепочечных магнитных взаимодействий [10, 11]: обменное взаимодействие между *3d*-электронами двухвалентного марганца и *2p*-электронами *NO*-группы – антиферромагнитное, а магнитные моменты *NO*-групп одного дирадикала упорядочены ферромагнитным образом. Сколько-нибудь заметной

магнитной анизотропии по данным кривых намагничивания обнаружено не было [10].

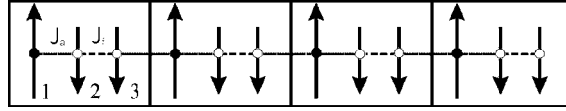


Рис. 2. Модель цепочки $(5/2, 1/2, 1/2)$ с двумя типами обмена.

В работе [11] была предложена модель магнитной структуры соединений семейства $[Mn(hfac)_2BNO_R]$ выше точки трехмерного упорядочения – ферри-магнитная спиновая цепочка из тримеров $(5/2, 1/2, 1/2)$ с чередующимся знаком изотропного обменного взаимодействия (Рис. 2). Обмен между спинами $1/2$ ферромагнитный (J_f) и значительно превосходит по абсолютной величине антиферромагнитный обмен (J_a) между спинами $5/2$ и $1/2$. В этой же работе указывалось, что для описания термодинамических свойств соединения можно рассматривать спины NO -групп связанными в единый спин $S = 1$, т. е. пренебрегать синглетным состоянием этой пары.

Цель диссертационной работы. Целью работы является теоретическое описание магнитных и термодинамических свойств квантовой ферримагнитной цепочки $(5/2, 1)$, которая является простейшей спиновой моделью металл-органических соединений $[Mn(hfac)_2BNO_R]$ выше точки трехмерного упорядочения.

Были поставлены следующие задачи:

- Исследовать основное состояние цепочек $(5/2, 1)$ и $(5/2, 1/2, 1/2)$. Рассчитать энергию и волновую функцию основного состояния. Определить границы применимости упрощенной модели $(5/2, 1)$.
- Рассчитать спектр элементарных возбуждений ферримагнитных цепочек $(5/2, 1)$ и $(5/2, 1/2, 1/2)$. Определить температурное поведение магнитной восприимчивости и теплоемкости.

- Построить кривую намагничивания ферримагнитной цепочки $(5/2, 1)$. Проверить, реализуется ли эффект квантования намагниченности.
- Рассчитать магнетокалорический эффект и проверить соотношения скейлинговой теории для возможных квантовых фазовых переходов.

Научная новизна работы

1. Впервые проведен расчет энергии, намагниченностей подрешеток и корреляционной длины для основного состояния квантовой ферримагнитной цепочки $(5/2, 1/2, 1/2)$. Определен спектр ее элементарных возбуждений.
2. При помощи модифицированной теории спиновых волн для одномерного квантового ферримагнетика объяснена температурная зависимость магнитной восприимчивости соединения $[Mn(hfac)_2BNO_R]$.
3. Проведено обобщение метода матричных произведений на ферримагнитные цепочки, элементарная ячейка которых состоит из трех спинов. Исследована зависимость точности результата от размерности матриц элементарных ячеек и предложен критерий для ее выбора.
4. Методом точной диагонализации на конечном кластере с выделением центрального узла рассчитан полный спектр цепочки $(5/2, 1)$ в магнитном поле.
5. Прямым расчетом кривой намагничивания подтверждено существование "квантовых" плато намагниченности для одномерного квантового ферримагнетика $(5/2, 1)$, не возникающих при классическом описании системы.
6. Для квантовой ферримагнитной цепочки $(5/2, 1)$ обнаружена точка квантового фазового перехода при значении поля, разрушающего плато основного состояния. Проведена оценка величины критического поля и прямы-

ми численными расчетами показано выполнение скейлинговых соотношений для "магнитного" параметра Грюнайзена Γ_H .

Практическая ценность работы: проведенные исследования имеют научную и практическую ценность.

Во-первых, большая величина спина блока допускает возможность квантовых аномалий в поведении намагниченности ферромагнитной цепочки, и разработанный нами метод вычисления полного спектра позволил прямым расчетом подтвердить их существование, определить критическое поле квантового фазового перехода и проверить выполнение скейлинговых соотношений. Проведенные расчеты подтверждают представление о квантовом ферромагнетике (S, s) как о "составной" системе, проявляющей свойства и ферромагнитной цепочки $S - s$ и антиферромагнитной цепочки спина $2s$.

Во-вторых, апробированный алгоритм расчета спектра цепочки предполагается использовать для объяснения особенностей поведения намагниченности в сверхсильных импульсных магнитных полях для соединений $[Mn(hfac)_2BNO_R]$ ($R = H, Cl$) ниже точки трехмерного упорядочения. В настоящее время уже имеется теория [15], объясняющая аномалии магнитной восприимчивости и очень большое время магнитной релаксации, экспериментально обнаруженные в этих соединениях [16]. Однако в работе [15] спектр цепочек, взаимодействующих между собой и с внешним магнитным полем, моделировался с помощью осцилляторной модели. Информация о полном спектре отдельной цепочки позволит более корректно рассчитать энергию междоцепочечного взаимодействия, кинетические коэффициенты обмена энергией и построить более точную микроскопическую теорию.

В-третьих, на примере квантового ферромагнетика $(5/2, 1)$ был успешно апробирован метод диагонализации для низкоразмерных квантовых систем с учетом спиновой $SU(2)$ симметрии, предложенный в работе [17] для двумерных

На защиту выносятся следующие основные результаты и положения:

1. Обобщение метода матричных произведений и модифицированной теории спиновых волн на случай ферромагнитной цепочки, состоящей из трех спинов на элементарную ячейку, и расчет с помощью этих подходов свойств основного состояния, спектра низколежащих возбуждений и термодинамических свойств цепочки $(5/2, 1/2, 1/2)$.
2. Подтверждение существования квантовых плато намагниченности на кривой намагничивания цепочки $(5/2, 1)$, предсказываемых теорией Ошикавы-Яманаки-Аффлека.
3. Прямой расчет магнетокалорического эффекта: построение изоэнтропийных кривых и расчет магнитного параметра Грюнайзена. Обнаружение аномалий магнетокалорического эффекта при значении поля H_c , разрушающего плато основного состояния.
4. Выполнение скейлинговых соотношений для магнитного параметра Грюнайзена в области низких температур вблизи H_c , указывающее на существование квантового фазового перехода.

Перечисленные положения, выносимые на защиту, определяют научную новизну выполненных в рамках работы над диссертацией исследований.

Апробация. Результаты диссертации представлялись и докладывались на следующих конференциях и семинарах: 33 Всероссийском совещании по физике низких температур НТ-33 (г. Екатеринбург, 2003 г.), Международной конференции LDM-2003 (г. Флоренция, Италия, 2003 г.), V, VI Региональной Школе-Конференции для студентов, аспирантов и молодых ученых по математике и физике (г. Уфа, 2005, 2006 гг.), II летней научной школе фонда "Династия"

(Москва, 2005 г.), XXXI Международной зимней школе физиков-теоретиков "Коуровка" (г. Кыштым, 2006 г.), научно-исследовательской стажировке молодых ученых "Современные информационные и компьютерные технологии в инженерно-научных исследованиях" (г. Уфа, 2006 г.), Международной конференции Eastmag-2007 (г. Казань, 2007 г.), XXXII Международной зимней школе физиков-теоретиков "Коуровка" (Зеленый Мыс, 2008 г.).

Публикации. Основные результаты диссертации полностью изложены в десяти статьях и тезисах международных конференций, включая 5 статей в ведущих отечественных и зарубежных журналах. Полный список работ приводится в конце автореферата.

Структура и объем диссертации. Диссертационная работа состоит из введения, шести глав, заключения, списка цитируемой литературы и насчитывает 140 страниц, включая 26 рисунков, 5 таблиц и 168 библиографических ссылок.

Содержание работы

Во Введении дается краткий обзор литературы, обосновывается актуальность и практическая значимость темы диссертации, формулируется цель исследования.

В первой главе приводится обзор работ, которые дают представление об истории становления и современном состоянии теории квантовых одномерных ферримагнетиков. Подробно рассматривается вопрос об условиях существования квантовых плато намагниченности на кривой намагничивания ферримагнитных цепочек. Приведен обзор работ, в которых обсуждается возможность обнаружения квантовых критических точек по аномалиям магнетокалорического эффекта, и предсказывается характер поведения магнитного параметра Грюнайзена вблизи таких точек.

Остальная часть главы посвящена обзору современных аналитических и численных методов, используемых для расчета свойств квантовых спиновых цепочек: квантовый метод Монте-Карло, методы ренорм-группы матрицы плотности и матричных произведений, метод точной диагонализации.

Во второй главе излагается способ и результаты вычислений энергии, намагниченностей подрешеток, корреляционной длины в основном состоянии ферримагнитной цепочки $(5/2, 1/2, 1/2)$ с помощью метода матричных произведений [18].

В гамильтониане цепочки

$$\hat{H} = J_a \sum_n \vec{S}_{1n} \vec{S}_{2n} + J_f \sum_n \vec{S}_{2n} \vec{S}_{3n} + \frac{J_a}{2} \left(\sum_n \vec{S}_{3n} \vec{S}_{1n+1} + \sum_n \vec{S}_{3n-1} \vec{S}_{1n} \right) \quad (2)$$

первые два слагаемых представляют внутриблочное обменное взаимодействие, последнее – взаимодействие с соседними блоками (обозначение спинов соответствуют Рис. 2). Перед построением матриц цепочки была проведена процедура диагонализации блочного гамильтониана: рассчитан спектр энергии тримеров и собственные функции в базисе полного спина как функции отношения $\delta = |J_f|/J_a$.

В формализме метода матричных произведений состояние цепочки из N блоков с периодическими граничными условиями описывается функцией

$$|\Omega\rangle = Tr(\hat{g}_1 \hat{g}_2 \dots \hat{g}_N). \quad (3)$$

Элементарные матрицы блоков \hat{g}_i строятся из волновых функций тримера и некоторых тензорных матричных констант \hat{X}^{kq} :

$$\hat{g}^{\frac{3}{2}\frac{3}{2}} = \sum_{k\lambda} C_{\frac{3}{2}}^{k\lambda} \sum_{q\mu} \begin{bmatrix} k & \lambda & \frac{3}{2} \\ q & \mu & \frac{3}{2} \end{bmatrix} \hat{X}^{kq} \left| \left(\frac{5}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2} \right) \lambda \mu \right\rangle, \quad (4)$$

где [...] – коэффициенты Клебша-Гордана группы вращений, $C_{\frac{3}{2}}^{k\lambda}$ – вариационные параметры. Размерность элементарных матриц определяется размерностью выбранных тензорных констант. Авторы оригинального метода использовали тензорные константы порядков $k = 0$ и $k = 1$ (4 матрицы размерностью 2×2). Можно убедиться, что в этом случае при построении $\hat{g}_{\frac{3}{2}}^{\frac{3}{2}}$ будут учтены только функции основного и первого возбужденного состояний тримера; вариационных параметров будет три: $C_{\frac{3}{2}}^{0\frac{3}{2}} \equiv u$, $C_{\frac{3}{2}}^{1\frac{3}{2}} \equiv v$, $C_{\frac{3}{2}}^{1\frac{5}{2}} \equiv w$ (из них 2 независимых). Использование векторных констант размерностью 3×3 позволяет учесть вклад всех уровней блока, но при этом число вариационных параметров возрастает до 6 (5 независимых). Мы провели расчет на матрицах обоих типов, сравнили и объяснили результаты.

Энергия в расчете на блок записывается следующим образом:

$$\begin{aligned} \frac{E_{3/2}}{N} = & \frac{\text{Tr} \left(\left(\left(\hat{g}_1^{\frac{3}{2}} \right)^\dagger \otimes \left(\left(J_a \left(\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 \right) + J_f \left(\vec{S}_2 \cdot \vec{S}_3 \right) \right) \hat{g}_1^{\frac{3}{2}} \right) \right) \hat{G}_1^{N-1} \right)}{\text{Tr} \left(\hat{G}_1^N \right)} \\ & + J_a \frac{\text{Tr} \left(\left(\left(\hat{g}_1^{\frac{3}{2}} \right)^\dagger \otimes \left(\vec{S}_3 \hat{g}_1^{\frac{3}{2}} \right) \right) \left(\left(\hat{g}_2^{\frac{3}{2}} \right)^\dagger \otimes \left(\vec{S}_1 \hat{g}_2^{\frac{3}{2}} \right) \right) \hat{G}_1^{N-2} \right)}{\text{Tr} \left(\hat{G}_1^N \right)}, \end{aligned} \quad (5)$$

где $\hat{G} = \left(\hat{g}^{\frac{3}{2}} \right)^\dagger \otimes \hat{g}^{\frac{3}{2}}$ – трансфер-матрица блока, знак \otimes означает прямое произведение матриц. Это выражение является функцией вариационных параметров. Ее минимальное значение в пределе $N \rightarrow \infty$ дает энергию основного состояния, а значения параметров, при которых оно достигается, определяют собственную функцию основного состояния. Численная минимизация проводилась симплекс-методом.

Результат для энергии основного состояния при различных отношениях обменных интегралов приведен на Рис. 3(а) (базис 2×2)

Как видно из графика, энергия в расчете на блок меняется от значения $-7.0 J_a$, которое соответствует невзаимодействующим блокам, до величины $-5.805 J_a$,

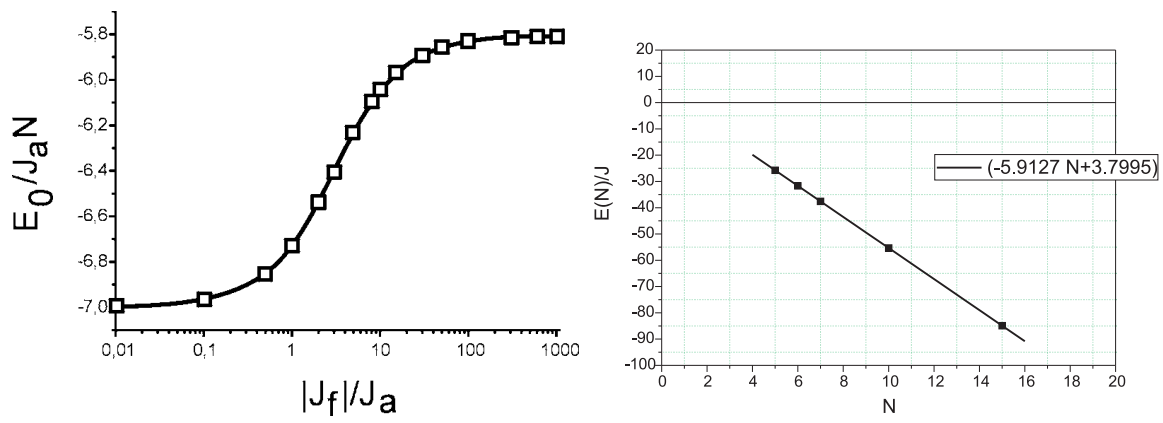


Рис. 3. Энергия основного состояния на блок как функция отношения $|J_f|/J_a$ (а); энергия нижней оптической ветви спектра цепочек различной длины при $k = 0$ (метод МРМ) (б).

причем это значение практически постоянно для $|J_f|/J_a > 10$. Расчет на матрицах 3×3 дает для предельного значения несколько меньшую величину $-5.914 J_a$, что ближе к значению, полученному методом цепных дробей ($-5.913 J_a$) [19].

Формализм метода матричных произведений позволяет провести расчет наблюдаемых: средних значений намагниченности подрешеток

$$\langle S_i^z \rangle = \frac{\text{Tr} \left(\left(\hat{g}_1^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \right)^\dagger \otimes \left(S_i^z \hat{g}_1^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \right) \hat{G}_1^{N-1} \right)}{\text{Tr} \left(\hat{G}_1^N \right)}, \quad i = 1, 2, 3 \quad (6)$$

и спиновых корреляционных функций

$$\langle S_{1i}^z S_{nj}^z \rangle = \frac{\text{Tr} \left(\left(\hat{g}_1^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \right)^\dagger \otimes \left(S_i^z \hat{g}_1^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \right) \hat{G}_1^{n-2} \left(\hat{g}_n^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \right)^\dagger \otimes \left(S_j^z \hat{g}_n^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \right) \hat{G}_1^{N-n} \right)}{\text{Tr} \left(\hat{G}_1^N \right)}. \quad (7)$$

Графики для средних намагниченностей подрешеток представлены на Рис. 4. Предельные значения при $J_f \rightarrow \infty$ равны $\langle S_1^z \rangle = 2.26$, $\langle S_2^z \rangle = \langle S_3^z \rangle = -0.38$. Асимптотическое поведение корреляционной функции при $n \rightarrow \infty$

$$\langle S_{1i}^z S_{nj}^z \rangle = a + b \exp \left(-\frac{n}{\xi} \right), \quad (8)$$

для корреляционной длины ξ было получено значение 0.336.

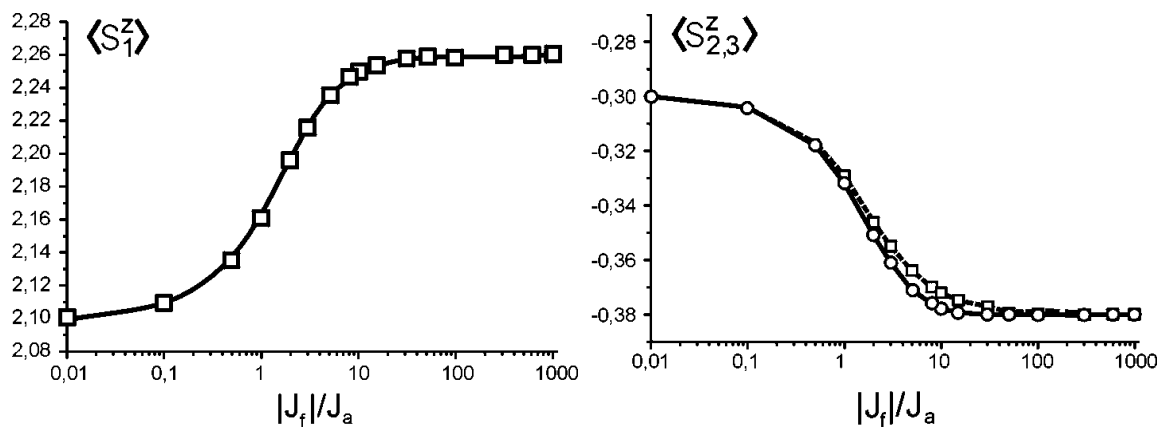


Рис. 4. Поведение намагниченности подрешеток в зависимости от отношения $\delta = |J_f|/J_a$

По результатам расчетов главы 2 были сделаны следующие выводы: оптимальным размером для матриц блоков будет тот минимальный размер, при котором будут учтены все состояния блока; упрощенной моделью $(5/2, 1)$ можно пользоваться при отношении $\delta = |J_f|/J_a > 10$; основное состояние квантовой цепочки $(5/2, 1/2, 1/2)$ характеризуется сильными квантовыми флуктуациями, значительно сокращающими среднюю величину намагниченности подрешеток, и крайне малой корреляционной длиной.

Отметим, что спин-волновой расчет средней энергии основного состояния и намагниченностей подрешеток для модели $(5/2, 1)$ ($\langle S_1^z \rangle = 2.269$, $\langle S_2^z \rangle = -0.769$) хорошо согласуется со значениями, полученными методом матричных произведений.

В третьей главе приводится способ и результаты расчета спектра возбуждений двумя различными методами: матричных произведений и модифицированных спиновых волн. С помощью последней теории определяются магнитная восприимчивость и теплоемкость.

Спин-волновой расчет проводился для цепочки $(5/2, 1/2, 1/2)$. Были получены три ветви спектра: бесщелевая акустическая ветвь возбуждений над ферри-магнитным основным состоянием с намагниченностью $M = \sum_{i=1}^n (S_{1i}^z + S_{2i}^z + S_{3i}^z) = 3/2 N - 1$, нижняя оптическая мода, соответствующая полной намагниченности

$M = 3/2 N + 1$, и верхняя с $M = 3/2 N + 2$.

Энергия нижней оптической ветви спектра считалась также и методом матричных произведений по методике, предложенной в работе Колежука и др. [20]. Пробная волновая функция оптических магнонов с импульсом k выбиралась в виде

$$|k\rangle = \sum_n e^{ikn} |n\rangle, |n\rangle = Tr \{g_1 \dots g_{n-1} \tilde{g}_n g_{n+1} \dots g_L\}. \quad (9)$$

Матрицы \hat{g} совпадают с элементарными матрицами основного состояния, а \tilde{g} имеет квантовые числа $(\frac{5}{2}, \frac{5}{2})$.

В функционале энергии явно выделяется слагаемое $N E_{gs}$, пропорциональное числу N блоков в цепочке, и энергия возбуждений $\omega(k)$:

$$E = N E_{gs} + \omega(k), E_{gs} = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{\langle k | H^{(1)} | k \rangle}{\langle k | k \rangle}, \omega(k) = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{\langle k | H^{(0)} | k \rangle}{\langle k | k \rangle}. \quad (10)$$

Индексы (1) и (0) обозначают члены, пропорциональные N^1 и N^0 соответственно. Расчет проводился на матрицах размерностей 2×2 и 3×3 .

На Рис. 3(б) приведены данные расчета энергии цепочек различной длины для $k = 0$. Хорошо видно, что линейная зависимость (10) действительно выполняется. На вставке приведены результаты обработки методом наименьших квадратов. Величина оптической щели оказалась равной $3.79J$, что прекрасно совпадает с результатом ($3.7939 J$), полученным методом цепных дробей [19].

Температурная зависимость магнитной восприимчивости соединения $[Mn(hfac)_2 BNO_R]$ (Рис. 5) рассчитывалась с помощью модифицированной теории спиновых волн. Показано, что отношение $|J_f|/J_a$ для обменных интегралов внутри цепочки не меняет профиль восприимчивости до максимально достижимых температур эксперимента (порядка 350K).

В четвертой главе описывается расчет спектра цепочки $(5/2, 1)$ с помощью одномерного варианта метода точной диагонализации на конечном кла-

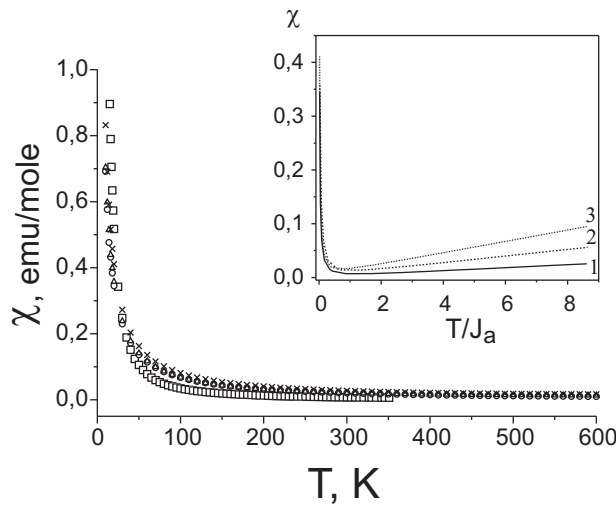


Рис. 5. Температурная зависимость восприимчивости в нулевом поле. (\square) – экспериментальные данные, (\circ) – $J_f = -2321K$, $\delta = \frac{|J_f|}{J_a} = 2.00$; (\triangle) – $J_f = -696K$, $\delta = 1$; (\times) – $J_f = -23K$, $\delta = 0.02$ – результаты модифицированной спин-волновой теории

стере с выделением центрального спина, предложенного в работе [17] для двумерного антиферромагнетика. Рассматривается цепочка длиной 9 узлов: центральный узел $S_0 = 1$ и по 4 узла в его окружении справа и слева. Сначала гамильтонианы правой и левой частей диагонализуются на функциях полного спина S_l (S_r) четырех узлов, а затем, по формулам сложения моментов, образуется базис функций полного спина окружения (S_u). На втором этапе строится и диагонализуется матрица оператора взаимодействия центрального узла с окружением. Средняя энергия на связь ε_{iS} рассчитывается через веса базисных функций α , энергию полного кластера E_{iS} , энергии левой и правой частей ($E_{i_l S_l}, E_{i_r S_r}$) по формуле

$$\varepsilon_{iS} = \frac{1}{2} \left(E_{iS} - \sum_{i_l, S_l, i_r, S_r, S_u} |\alpha_{i_l S_l i_r S_r S_u}^{iS}|^2 (E_{i_l S_l} + E_{i_r S_r}) \right). \quad (11)$$

Наблюдаемые намагнитченности подрешеток вычисляются как квантовомеханические средние для центрального узла $\langle iSM | S_0^z | iSM \rangle$ и его ближайших соседей $\langle iSM | S_1^z | iSM \rangle$ ($S_1 = \frac{5}{2}$) на волновых функциях полной цепочки. Поскольку корреляционная длина мала, а размер кластера достаточно большой, это

позволяет значительно уменьшить влияние краевых эффектов. Благодаря учету $SU(2)$ - симметрии, матрица гамильтониана взаимодействия центрального узла с его окружением разбивается на сектора, соответствующие разным значениям спина, которые могут быть диагонализированы независимо. Это позволяет найти спектр цепочки ε_{iS} полностью, не пренебрегая никакими состояниями. Полученный нами спектр будет достаточно хорошим приближением к низшим и центральным значениям энергии связи для бесконечной цепочки.

В пятой главе решается проблема построения кривой намагничивания с помощью спектра ε_{iS} , полученного в предыдущей главе, и определяется критическое поле H_c , разрушающее плато основного состояния. Подобная задача решалась ранее методом дискретного континуального интегрирования (DPIR) [19]. В результате для низких температур получается ступенчатая кривая, представленная на графике 6(б), которая подтверждает основной результат работы [2].

Стандартный способ изучения процесса намагниченности при $T = 0$ – определить $E(N, M)$ как наинизшую энергию гамильтониана ферримагнитной цепочки в подпространстве с фиксированным значением полной намагниченности $\sum_j (S_j^z + s_j^z) = M$ для конечной системы из N элементарных блоков (S, s) . Тогда намагниченность на блок m выводится из условия

$$m = \frac{M}{N} : M = \max [M \mid E(N, M + 1) - E(N, M) > H],$$

что даст, в свою очередь, ступенчатую кривую. К сожалению, метод точной диагонализации страдает от сильных конечномерных эффектов, что при расчете магнитной термодинамики проявляется как "колебания" изоэнтропийных кривых в низкотемпературном режиме и затрудняет исследование магнетокалорического эффекта. Чтобы избежать этой трудности и получить сглаженные кривые намагничивания при $T = 0$, аппроксимирующие результат термодинамического предела, метод точной диагонализации обычно комбинируют с скей-

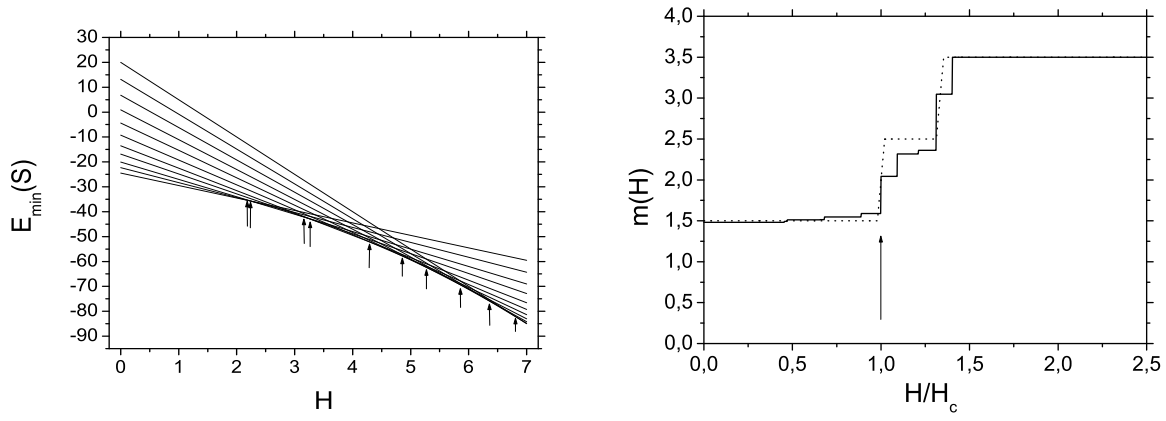


Рис. 6. (а) Схема построения кривой намагничивания при $T = 0$; (б) Кривая намагничивания ферримагнитной цепочки $(5/2, 1)$ при $T = 0$, восстановленная по спектру системы из $N = 9$ узлов. Скачок намагниченности при критическом поле $H_c = 3.04 J$ отмечен стрелкой. Результат DPIR расчета для низких температур ($T = 0.001 J$) показан для сравнения.

линговым анализом, основанным на конформной теории поля [21].

В предложенном в диссертации подходе намагниченность на блок при $T = 0$ рассчитывается следующим образом.

Определяем наинизшие по энергии кластерные уровни $E_{\min}(S) - SH$ для каждого значения S как функции приложенного внешнего магнитного поля, и строим огибающую для семейства этих кривых (Рис. 6(а)). Для кластера из 9 узлов имеется 10 отрезков огибающей, соответствующих изменениям спина на $\Delta S = 1$ в точках (показаны стрелками), где магнитное поле определяется соотношением

$$H_{\text{clust}}(S) = E_{\min}(S) - E_{\min}(S - 1), \quad S = 6, \dots, 15. \quad (12)$$

Учитывая, что намагниченность на блок в состоянии $|iSM\rangle$ определяется соотношением

$$\langle S_B \rangle_{iSM} = \langle S_0^z \rangle_{iSM} + \langle S_1^z \rangle_{iSM}, \quad (13)$$

для каждого участка огибающей находим намагниченность $m^{\min}(H)$ и энергию

ε_S^{\min} блока согласно выражениям (13) и (11), соответственно. При $T = 0$ поведение $m^{\min}(H)$ обнаруживает ступенчатый характер (Рис.6(б)). Заметный скачок $m^{\min}(H)$ возникает при смене наименьших зеемановских уровней, имеющих значения спина кластера $S = 10$ и $S = 11$. Предыдущие скачки намагниченности, соответствующие изменению полного спина кластера от 5 до 10, оказываются сильно подавленными, из чего можно сделать вывод, что они вносят вклад в плато основного состояния с $m = 3/2$. При этом следует учитывать, что значения магнитного поля H , определяются спектром конечного кластера и необходимо изменить масштаб значений поля, чтобы воспроизвести кривую намагничивания бесконечной системы и оценить критическое поле H_c . Для этого можно использовать соотношение $\varepsilon'(m) = H$, из которого следует, что намагниченность претерпевает скачки при значениях

$$H_{\text{jump}}(S) = \frac{\varepsilon_S^{\min} - \varepsilon_{S-1}^{\min}}{m_S^{\min} - m_{S-1}^{\min}}. \quad (14)$$

Используя численные данные для перехода между состояниями со спинами 9 и 10, получаем $H_{\text{jump}}(10) = 3.0407 J$, и масштабируем все значения магнитных полей к этой величине. Как следствие, для критического поля получается значение $H_c = H_{\text{jump}}(11) \approx 3.43 J$ (вместо $H_{\text{clust}}(11) = 4.85 J$). Этот результат следует сравнить с предсказаниями спин-волновой теории $3.0 J$ и метода матричных произведений $3.79 J$.

При конечной температуре намагниченность на блок рассчитывается как $m = -\partial F / \partial H$, где $F = -T \ln Z$ есть свободная энергия. Статистическая сумма блока $Z(T, H) = \sum_{iSM} \exp[-\varepsilon_{iSM}(H)/T]$ вычисляется с помощью значений энергии

$$\varepsilon_{iSM}(H) = \varepsilon_{iS} - H \langle S_B \rangle_{iSM}.$$

Шестая глава посвящена исследованию магнетокалорического эффекта. В работах [8, 9], основываясь на аргументах скейлинг-анализа, было предсказано, что магнетокалорический эффект очень удобен для изучения квантового

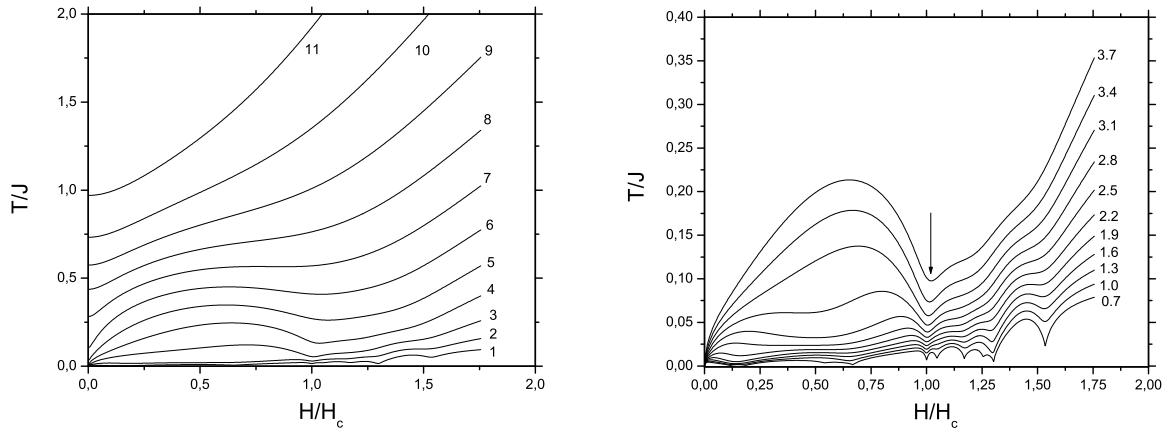


Рис. 7. Кривые постоянной энтропии для ферримагнитной цепочки $(5/2,1)$ в большом (а) и малом (б) масштабах. Значения энтропии на блок S/N , измеренные в единицах k_B , отмечены числами на конце каждой линии. Наклон вблизи предполагаемой квантовой критической точки показан стрелкой.

критического поведения, поскольку, в отличие, например, от теплоемкости, ведет себя более сингулярным образом вблизи точки квантового фазового перехода (КФП), и поэтому его можно использовать для поиска таких точек.

В частности, магнитный параметр Грюнайзена Γ_H

$$\Gamma_H = -\frac{(dM/dT)_H}{C_H} = \frac{1}{T} \left. \frac{dT}{dH} \right|_S, \quad (15)$$

где C_H – теплоемкость в постоянном магнитном поле, расходится, когда T стремится к нулю для любого квантового фазового перехода, управляемого внешним полем, и по его поведению можно определить критические показатели, характеризующие КФП. Расходимость $\Gamma_H \sim T^{-\beta}$ определяется $\beta = 1/\nu z$, где ν – критический показатель корреляционной длины $\xi \propto |r|^\nu$ и z – динамический критический показатель, описывающий расходимость времени корреляции $\tau_c \propto \xi^z$ [22]. Контролируемый параметр $r = (H - H_c)/H_c$ представляет собой расстояние до квантовой критической точки (ККТ). Другим индикатором ККТ является смена знака параметра Грюнайзена на фазовой диаграмме

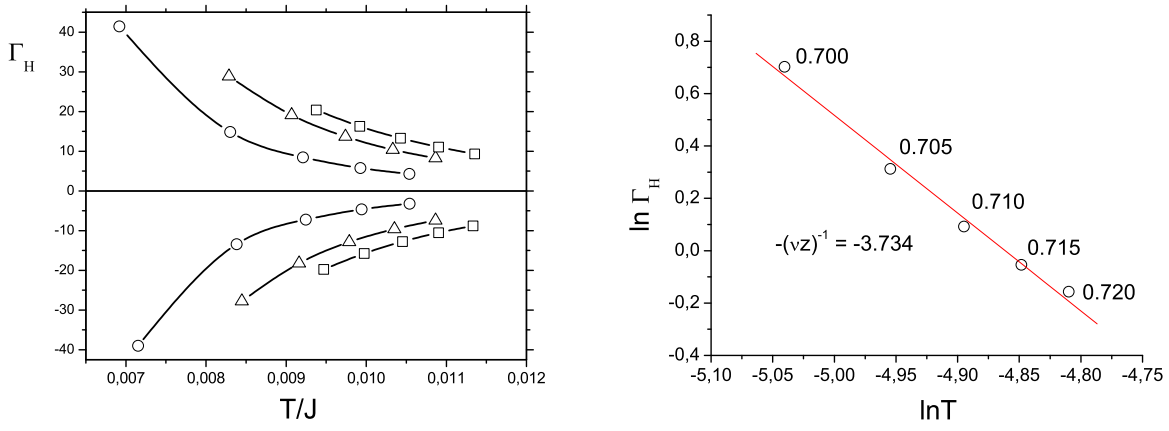


Рис. 8. Магнетокалорический эффект вблизи критического поля H_c при изменении температуры в области низких температур и при постоянном значении контролируемого параметра r : $\pm 0.66 \times 10^{-3}$ (\bigcirc), $\pm 1.76 \times 10^{-3}$ (\triangle), $\pm 2.76 \times 10^{-3}$ (\square) (а); "log-log" график Γ_H от температуры в квантовом критическом режиме $r = 0$ (б).

ме (T, H) в области конечных температур. Накопление энтропии происходит вблизи ККТ, поскольку непосредственно над этой точкой система находится в состоянии фрустрации, выбора между двумя равновозможными основными состояниями. Результаты скейлинг-анализа предсказывают для параметра Грюнайзена расходимость от обратного значения контролируемого параметра $\Gamma_H = -G_r/(H - H_c)$, когда $T \rightarrow 0$. Множитель $G_r \leq 0$ является универсальным и определяется только критическими индексами

$$G_r = -\frac{\nu (y_0^\pm z - d)}{y_0^\pm}, \quad (16)$$

где d – размерность, y_0^+ и y_0^- связаны с низко-температурным поведением теплоемкости $C_H \sim T^{y_0^\pm}$ справа и слева от точки КФП соответственно.

Кривые адиабатического намагничивания для квантовой ферромагнитной цепочки $(5/2, 1)$ могут быть рассчитаны либо прямым численным решением уравнения $S(H, T) = \text{const}$, либо численным интегрированием дифференциально соотношения

$$\left. \frac{dT}{dH} \right|_S = -T \frac{(dM/dT)_H}{C_H}. \quad (17)$$

Далее используется первый способ, поскольку он более устойчив при малых полях и температурах.

Результат, представленный на Рис. 7, демонстрирует, что изоэнтропийные кривые слегка изогнуты вниз вблизи точки $H = H_c$ с заметным минимумом. Как отмечено выше, такое поведение происходит в системах, где "ландшафт" изоэнтропийных кривых при конечных температурах определяется находящимся внизу квантовым фазовым переходом. В отличие от расчетов методом стандартной точной диагонализации (см., например, работу [23]), краевые эффекты ("wiggings") сильно подавлены при низких полях и заметны лишь при $H > H_c$. Отсутствие заметных колебаний может служить рабочим критерием для отбора изоэнтропийных кривых при анализе квантовой критичности.

В остальной части главы рассматривается вопрос, согласуются ли предсказания скейлинговой теории с приведенными расчетами. Изменение $\Gamma_H(T)$ при постоянном магнитном поле обнаруживает расходимость вплоть до наинизших достижимых температур с очень большими значениями Γ_H (Рис. 8(а)).

Следует особо отметить, что такая же расходимость в температурном поведении Γ_H была найдена для хорошо известной системы с квантовым фазовым переходом – изинговской цепочки в поперечном поле [22]. Кривые оказываются симметричными относительно инверсии $r \rightarrow -r$, изменение знака Γ_H происходит при $r = 0$. Из графика "log-log" для зависимости $\Gamma_H(T)$ от температуры (Рис. 8(б)) находим $\Gamma_H \propto T^{-\beta}$ с показателем $\beta \sim 3.734$, что дает критический показатель $\nu z \sim 0.27$, определяющий квантовый критический режим, $T \sim |r|^{\nu z}$, на фазовой диаграмме квантового фазового перехода.

Указанная расходимость в сочетании с изменением знака Γ_H найдена также при изменении поля вдоль изоэнтропийной линии (Рис. 9(б)). Отметим, что в

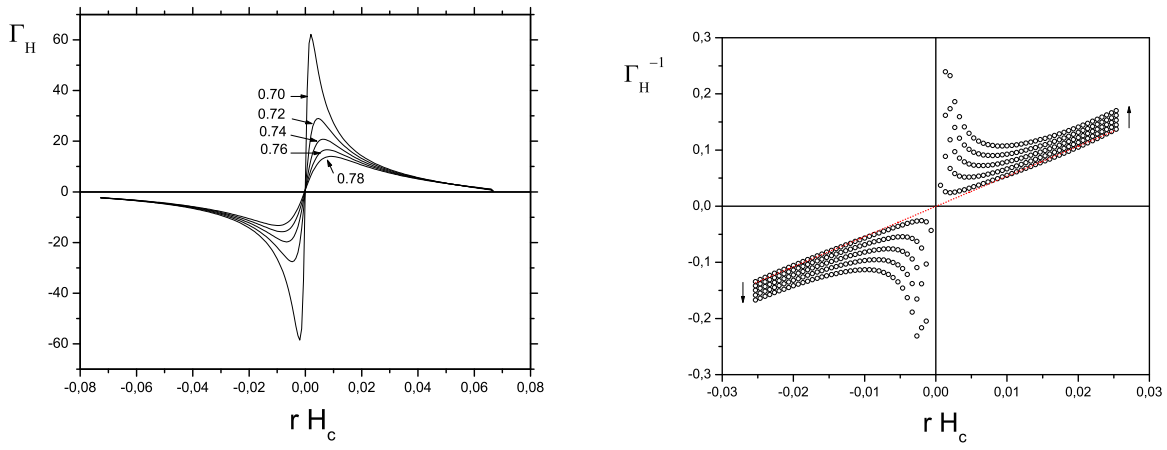


Рис. 9. (а) Магнетокалорический эффект вблизи критического поля H_c как функция контролируемого параметра r . Значение энтропии на блок показано стрелкой на конце каждой линии. (б) Зависимость обратной от Γ_H как функции r . Направление изменения энтропии от $0.70k_B$ до $0.78k_B$ с шагом $0.02k_B$ показано стрелками. Данные кривой $S = 0.70k_B$ подогнаны с помощью линии $3.5785(H - H_c) - 0.0004$ (пунктирная линия).

этом расчете удобнее контролировать значение энтропии, двигаясь вдоль изоэнтропийной кривой вблизи ККТ. Скейлинговый закон $\Gamma_H \sim -G_r/(H - H_c)$ хорошо виден на графике для обратной величины от Γ_H как функции параметра r (Рис. 9).

В Заключение сформулированы основные результаты, полученные в диссертационной работе:

1. Дано обобщение метода диагонализации на конечных кластерах, основанного на технике ренорм-группы в реальном пространстве, применительно к квантовой ферромагнитной цепочке $(5/2, 1)$. Метод позволяет находить оценки наблюдаемых в термодинамическом пределе, используя состояния конечного кластера.
2. С помощью упомянутого выше метода построена кривая намагничивания при низких температурах, обнаруживающая плато основного состояния.

3. Исследован магнетокалорический эффект и обнаружено его аномальное поведение вблизи критического магнитного поля, разрушающего плато основного состояния.
4. В полном согласии с предсказаниями скейлинговой теории, обнаружены характерные признаки индуцированного полем квантового фазового перехода: магнитный параметр Грюнайзена Γ_H (а) меняет знак при изменении магнитного поля и (б) обнаруживает степенную расходимость с уменьшением температуры.

Список публикаций по теме диссертации:

Статьи, опубликованные в ведущих рецензируемых научных журналах:

1. Бострем И.Г., Боярченков А.С., Коновалов А.А., Овчинников А.С., Синицын В.Е. К вопросу о квантовом плато намагниченности в металл-органических квазиодномерных ферримагнетиках // ЖЭТФ. –2003. –том 124. –вып. 3(9). –стр. 680-690.
2. Боярченков А.С. Изучение влияния краевых эффектов в расчетах термодинамических средних на низкоразмерных спиновых соединениях // Вестник Башкирского университета. –2006. –№3, –стр.17-19

Статьи в зарубежных научных журналах, в которых могут быть опубликованы основные научные результаты диссертации:

3. Ovchinnikov A.S., Bostrem I.G., Boyarchenkov A.S., Sinitsyn V.E., Baranov N.V., Inoue K. Low-energy excitations and thermodynamical properties of the quantum $(5/2, 1/2, 1/2)$ ferromagnetic chain. // J. Phys. Condens. Matter –2002. –Vol. 14. –p. 8067-8078.

4. Ovchinnikov A.S., Bostrem I.G., Sinitsyn V.E., Boyarchenkov A.S., Baranov N.V., Inoue K. Quantum dissipation theory of slow magnetic relaxation mediated by domain-wall motion in the one-dimensional chain compound $[Mn(hfac)_2BNO_H]$ // Phys. Rev. B. –2006. –Vol.74. –p.174427 (10 страниц)
5. Boyarchenkov A.S., Bostrem I.G., and Ovchinnikov A.S. Quantum magnetization plateau and sign change of the magnetocaloric effect in ferrimagnetic spin chain. // Phys. Rev. B. –2007. –Vol.76. –p.224410

Другие публикации:

6. Боярченко А.С. Вычислительная оптимизация метода точной диагонализации в приложении к 1D ферримагнитной цепочке с целью расчета энергетического спектра и особенностей магнетокалорического эффекта // Сборник материалов научно-исследовательской стажировки "Современные информационные и компьютерные технологии в инженерно-научных исследованиях". –Уфа: Рио БашГУ. –Т.2. –стр. 87-95.
7. А.С.Боярченко, И.Г.Бострем, А.С.Овчинников "Изучение влияния краевых эффектов в расчетах термодинамических средних на низкоразмерных спиновых соединениях" // сборник тезисов XXXI Международной зимней школы физиков-теоретиков "Коуровка", стр. 67. (г. Кыштым, 2006 г.)
8. А.С.Боярченко "Переход от ограниченного ферримагнитного кластера к квази-бесконечной 1D-цепочке при расчете магнетокалорического эффекта методом точной диагонализации с учетом симметрии" // сборник тезисов VI Региональной Школы-Конференции для студентов, аспирантов и молодых ученых по математике, физике и химии, стр. 153. (г. Уфа, 2006 г.)

9. A.S. Boyarchenkov, I.G. Bostrem, A.S. Ovchinnikov "Magnetization plateau and sign change of the magnetocaloric effect in ferrimagnetic spin chain" // сборник тезисов международной конференции Eastmag-2007, стр. 74. (г. Казань, 2007 г.)
10. А. С. Боярченко, И. Г. Бострем, А. С. Овчинников "Плато намагниченности и смена знака магнетокалорического эффекта в ферримагнитной спиновой цепочке", сборник тезисов XXXII Международной зимней школы физиков-теоретиков "Коуровка", стр. 115. (г. Новоуральск, 2008 г.)

Литература

- [1] Lieb D.H. and Mattis D.C. Ordering Energy Levels of Interacted Spin Systems // J. Math. Phys. –1962. – Vol.3. –p.749-751.
- [2] Oshikawa M., Yamanaka M., and Affleck I. Magnetization Plateaus in Spin Chains: "Haldane Gap" for Half-Integer Spins // Phys. Rev. Lett. –1997. –Vol.78. –p.1984-1987.
- [3] Affleck I., Kennedy T., Lieb E.H., and Tasaki H. Rigorous results of valence-bond ground states in antiferromagnets // Phys.Rev. Lett. –1987. –Vol. 59. –p. 799-802.
- [4] S. Yamamoto, T. Fukui, and T. Sakai, Characterization of ferrimagnetic Heisenberg chains according to the constituent spins // Eur. Phys. J. B –2000. –Vol. 15. –p. 211-219.
- [5] M.E. Zhitomirsky, A. Honecker Magnetocaloric effect in one-dimensional antiferromagnets // J. Stat. Mech.: Theor. Exp. –2004. –p. 07012-07032
- [6] H.-J. Mikeska, A.K. Kolezhuk "One-Dimensional Magnetism", доп. материал к лекционному курсу // Lect. Notes Phys. –2004. –Vol. 645, –p.1-83.
- [7] M.E. Zhitomirsky Enhanced magnetocaloric effect in frustrated magnets. // Phys. Rev. B. –2003. –Vol. 67. –p.104421 (7 страниц)
- [8] Zhu L., Garst M., Rosch A., and Si Q. Universally Diverging Grüneisen Parameter and the Magnetocaloric Effect Close to Quantum Critical Points // Phys. Rev. Lett. –2003. –Vol.91. –p. 066404 (4 страницы).
- [9] Garst M. and Rosch A. Sign change of the Grüneisen parameter and magnetocaloric effect near quantum critical points // Phys. Rev. B –2005. –Vol.71. –p. 205129 (10 страниц).

- [10] Inoue K., Iwamura H. One or two-dimensional ferro- and ferrimagnetic ordering formed by manganese (II) complexes with π -conjugated polynitroxide radicals // Synthetic Metals –1995. –Vol.71. –p.1793-1794.
- [11] Markosyan A.S., Iwamura H., Inoue K. Magnetic behavior of the ferrimagnetic ($1/2$, $5/2$, $1/2$) linear trimer in complexes of $Mn(hfac)_2$ with bis- and trisnitroxide radicals. // Molecular Crystals and Liquid Crystals, –1999. –Vol. 334. –p.549-568.
- [12] Ovchinnikov A.S., Bostrem I.G., Sinitsyn V.E., Baranov N.V., Inoue K. The ground-state properties of the one-dimensional heterospin chain ($5/2$, $1/2$, $1/2$) with alternating exchange // Journal of Physics Condensed Matter. –2001. –Vol.13. –p. 5521-5229.
- [13] Sakai T., Okamoto K. Quantum magnetization plateaux of an anisotropic ferrimagnetic spin chain. // Phys. Rev. B. –2002. –Vol.65. –p. 214403 (6 страниц).
- [14] Yamamoto S., Sakai T. Multiplateau magnetization curves of one-dimensional Heisenberg ferrimagnets // Phys. Rev. B. –2000. –Vol.62. –p. 3795-3800.
- [15] Ovchinnikov A.S., Bostrem I.G., Sinitsyn V.E., Boyarchenkov A.S., Baranov N.V., Inoue K. Quantum dissipation theory of slow magnetic relaxation mediated by domain-wall motion in the one-dimensional chain compound $[Mn(hfac)_2BNO_H]$ // Phys. Rev. B. –2006. –Vol.74. –p. 174427 (10 страниц)
- [16] Baranov N.V., Mushnikov N.V., Goto T., Hosokoshi Y., Inoue K. Slow dynamics of the magnetization in the ordered state of molecule based magnets with one-dimensional chain structure // Journal of Physics Condensed Matter. –2003. –Vol. 15. –p. 8881-8897.

- [17] Sinitsyn V.E., Bostrem I.G., Ovchinnikov A.S. Symmetry adapted finite-cluster solver for quantum Heisenberg model in two-dimensions: a real-space renormalization approach // J. Phys. A: Math. Theor. –2007. –Vol. 40. –p. 648-668.
- [18] Kolezhuk A. K., Mikeska H.-J., and Yamamoto. S. Matrix-product-states approach to Heisenberg ferrimagnetic spin chains // Phys. Rev. B –1997, –Vol. 55. –p. R3336-R3339
- [19] Бострем И.Г., Боярченков А.С., Коновалов А.А., Овчинников А.С., Синицын В.Е. К вопросу о квантовом плато намагниченности в металл-органических квазиодномерных ферримагнетиках // ЖЭТФ, 2003, –т. 124, –вып.3(9). –стр. 680-690.
- [20] Kolezhuk A.K., Mikeska H.J., Maisinger K., and Schollwöck U. Spinon signatures in the critical phase of the $(1, 1/2)$ ferrimagnet in a magnetic field // Phys. Rev. B –1999. – Vol. 59. –p. 13565-13568.
- [21] Sakai T. and Takahashi M. $S=1$ antiferromagnetic Heisenberg chain in a magnetic field. // Phys. Rev. B –1991. –Vol. 43 –p. 13383-13393.
- [22] Sachdev S. Quantum Phase Transitions. // Cambridge University Press: Cambridge, England. –ISBN-0 521 58254 (608 страниц)
- [23] Honecker A. and Wessel S. Magnetocaloric effect in two-dimensional spin-1/2 antiferromagnets // Physica B. –2006. –Vol.378-380. –p. 1098-1099.